

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H04458

研究課題名（和文）新たなマルチスケール軟X線回折顕微鏡の開発とその利用研究

研究課題名（英文）Development of multi-scale soft X-ray diffraction microscope and the application

研究代表者

中尾 裕則（Nakao, Hironori）

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・准教授

研究者番号：70321536

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,100,000円

研究成果の概要（和文）：高空間分解能の実空間イメージングが可能なコヒーレント回折イメージングに、視野可変機能を付加し、簡便な広視野観測から高空間分解能での観測まで連続的に観測可能な「マルチスケール軟X線回折顕微鏡」を建設し、メソスコピック構造である磁気テクスチャの実空間観測、視野可変機能の実証に成功した。

さらにインラインホログラフィ法を顕微鏡に適用し、フォーク型回折格子により生成した軟X線光渦の位相分布の観測に成功した。この結果から、磁気テクスチャの中のトポロジカル欠陥を敏感に捉えられること、その欠陥構造の特徴量であるトポロジカルナンバーを決定できることも明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では「マルチスケール軟X線回折顕微鏡」を建設し、複雑な解析なしにほぼ実像を観測できることだけでなく、簡便に視野を変えられることを実材料で実証することに成功した。これにより、測定対象全体を観測し、注目する箇所を探し出し、その部分にズームインし詳細に観測するような研究が簡便に可能となることが期待される。また、開発した顕微鏡の異なる利用方法に着目することで、磁性体のトポロジカル欠陥と呼ばれる特徴量を検知する方法を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：“Multiscale soft X-ray diffraction microscope” has been developed for observing spin textures, and we succeeded in demonstrating nearly real-space images of magnetic domain of spin texture without any analysis, in addition to zooming capability. Therefore, this microscope becomes a suitable technique to reveal unexpected responses of spin textures under external fields because the important region that needs to be observed for understanding the physical properties is unknown before the measurement.

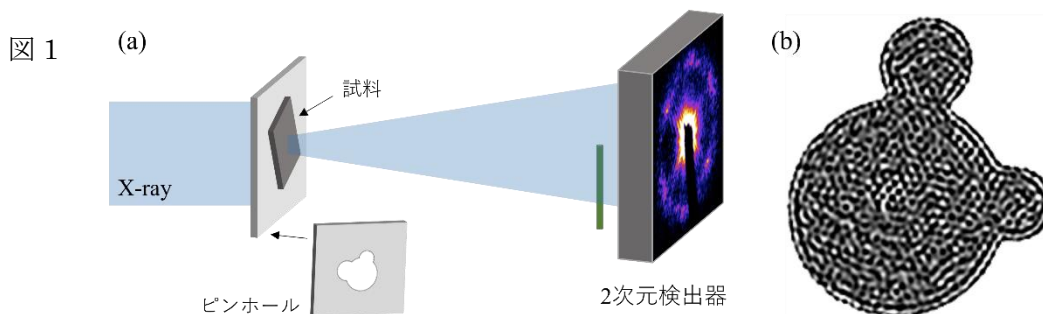
By utilizing in-line holography method with this microscope, we also succeeded in observing the phase distribution of the soft X-ray optical vortex generated by the fork-type grating. This result may pave the way for development of this technique to characterize the topological numbers of magnetic defects.

研究分野：構造物性

キーワード：軟X線イメージング 共鳴X線散乱 マルチスケール軟X線回折顕微鏡 コヒーレント回折イメージング  
ホログラフィ

### 1. 研究開始当初の背景

生命やソフトマターの研究では、これらの持つ階層的な構造が、系の性質や機能を理解する上で重要である。物性物理学においても、物性を理解する上での単位胞より広がったメゾスコピックな構造の重要性が指摘されてきた。しかしながら、単一手法での広い空間スケールの観測は容易ではなく、様々な測定手段で得られた断片的な構造情報からの議論が行われているのが現状であった。研究代表者らは、超伝導・巨大磁気抵抗効果・巨大電気磁気効果などの多彩な物性を発現する  $3d$  遷移金属化合物において、機能を担っている  $3d$  電子状態を直接的に捉えるために、軟 X 線領域にある  $L_{2,3}$  吸収端 ( $2p \rightarrow 3d$  遷移) を利用する共鳴 X 線散乱手法の開発・研究を推進してきた [1]。その結果、本手法では  $3d$  電子状態を直接的に観測できるだけでなく、中性子磁気散乱並みの非常に強い磁気信号が観測できることがわかってきた。さらに、本手法を小角散乱に適用し、磁気スキルミオン格子を反映した共鳴磁気信号の観測に成功した [2]。この共鳴軟 X 線小角散乱の測定を通じて、第 3 世代の放射光源ではない放射光施設 (PF) においても、軟 X 線領域であればコヒーレント回折イメージング (CDI) を実現できる程度のコヒーレント X 線強度が利用可能であることに気が付いた。そこで、PF での軟 X 線領域の CDI 実験手法開発を進めた。具体的には、磁気スキルミオン格子系を観測対象とし、非対称形状を持つピンホールでコヒーレント光を切り出し、直後で試料に照射することで、明瞭なコヒーレント回折像の観測 [図 1(a)]、反復位相回復解析による高空間分解能での磁気イメージング [図 1(b)] に成功した [3]。

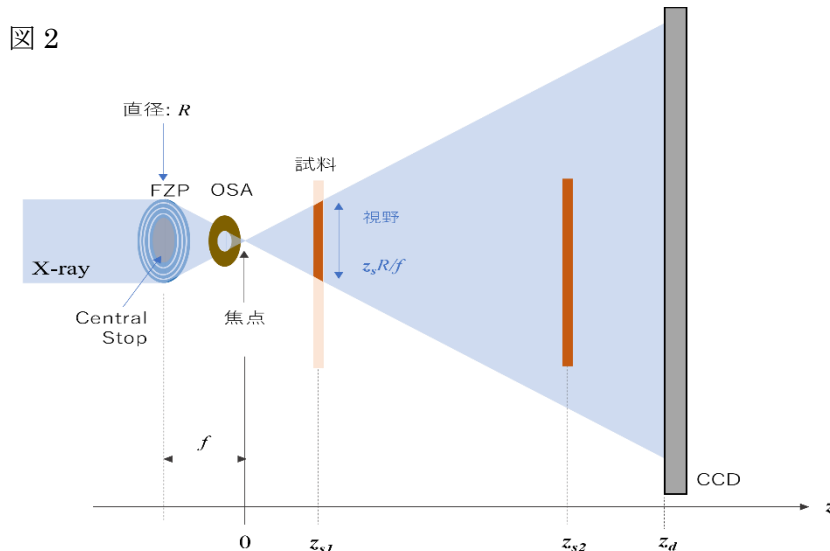


### 2. 研究の目的

研究代表者らが開発・研究してきた CDI 手法は、メゾスコピックスケールの磁気構造体の実空間イメージングが可能で、原理的に入射 X 線の波長程度までの高空間分解能での実空間イメージングが実現できる実験手法である。しかしながら観測領域・位置が、コヒーレント X 線を切り出すピンホールのサイズ・位置でそれぞれ決まってしまうため、広い空間スケールでの自由な観測が困難であった。そこで本研究では、この CDI 手法に新たな視野可変機能を付加し、簡便な広視野観測から、高空間分解能での観測まで連続的に観測可能な「マルチスケール軟 X 線回折顕微鏡」へと発展させ、メゾスコピック構造が起源となる物性の解明を目指す。

### 3. 研究の方法

着想に至ったマルチスケール軟 X 線回折顕微鏡の原理を説明する。試料の上流側に、フレネルゾーンプレート (FZP, 直径  $R$ ) を導入し、入射 X 線を集光する。また、集光している光以外を除去するために、FZP の中心のセントラーストップや高次光等を除去するためのピンホール (OSA) を導入する。この光学系では、FZP からの透過光の拡大像が 2 次元検出器で観測される。また

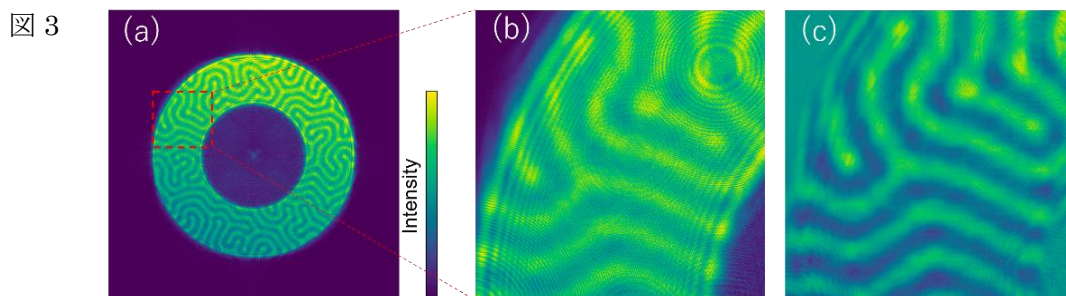


試料を、焦点位置と2次元検出器との間に設置することで、試料の吸収透過像が観測できる。この透過像の拡大率は、FZPの焦点距離 $f$ ・焦点位置から試料までの距離 $z_s$ で自由に制御でき、視野は $z_s R/f$ となる。具体的に、図2の $z_{s2}$ では試料全体にX線が照射できており、試料全体の吸収透過像が観測できる。焦点位置に近い $z_{s1}$ に試料を移動すると、ビームサイズは試料より小さく、試料の一部の拡大像が観測できる。これが試料位置を動かすことで、簡単に視野を変更できる「視野可変機能」である。なお、この新たな視野可変機能は、研究代表者らの実験の試行錯誤の中から見出したものであるが、その後調べるとすでに新たな顕微鏡として報告されていたものであった[4]。しかしながら、顕微鏡の測定手法としての研究が続いているものの、本研究で注目する磁性体のメゾスコピックな構造の観測への適用はされていなかった。そこで、(1)この新たな「視野可変機能」を開発・立ち上げしてきた軟X線顕微鏡に導入し、新たな測定法として確立させることを目指した[5]。さらに、(2)建設した顕微鏡の新たな利用研究の可能性の探求も進めた[6]。

#### 4. 研究成果

(1) マルチスケール軟X線回折顕微鏡の開発と磁気テクスチャの実空間観測・視野可変機能の実証[5]

本研究課題で開発するマルチスケール軟X線回折顕微鏡では、解析なしに「ほぼ」実像が測定できると期待されるが、厳密には試料からの回折のため実像イメージからのズレが生じる[4]。そこで、測定対象としている磁気ドメインがどのように観測されるか、シミュレーションにより検討した。ドメイン幅が $1\mu\text{m}$ 程度の場合のシミュレーション結果を図に示す。図3(a)に全体像を示すが、期待通り「ほぼ」実像の磁気ドメインが観測されることがわかる。また、図3(b)に拡大図を示すように、回折の成分も観測されている。さらに、左右円偏光の差分の計算[図3(c)]も示しているが、差分をとることで回折の影響による強度変調を抑制できることも示すことができた。



建設したマルチスケール軟X線回折顕微鏡を利用して、磁性薄膜[Pt/Co/Ta]の磁気ドメインの観測をCo  $L_3$ 端(779 eV)で試みた。シミュレーションの結果を参考に、左右円偏光で測定した像の差分イメージを測定した。図4(a)に $z_s$ が大きな値の場合の結果を示すが、広い範囲に磁気ドメインが広がっている様子を捉えることができています。 $z_s$ の値を小さくした磁気ドメインの拡大像の測定結果を図4(b)に示す。期待通り、拡大された実像イメージを捉えることができた。

このように、当初の予定通りにマルチスケール軟X線回折顕微鏡を建設し、メゾスコピック構造である磁気テクスチャの実空間観測、視野可変機能の実証に成功することができた。また、この結果は、シングルショットで実像を得る簡便な手法であり、外場に対する系の応答であるダイナミクス・カイネティクス観測を通じて、物性の起源となるメゾスコピックな構造を解明する手法として発展することが期待できる。

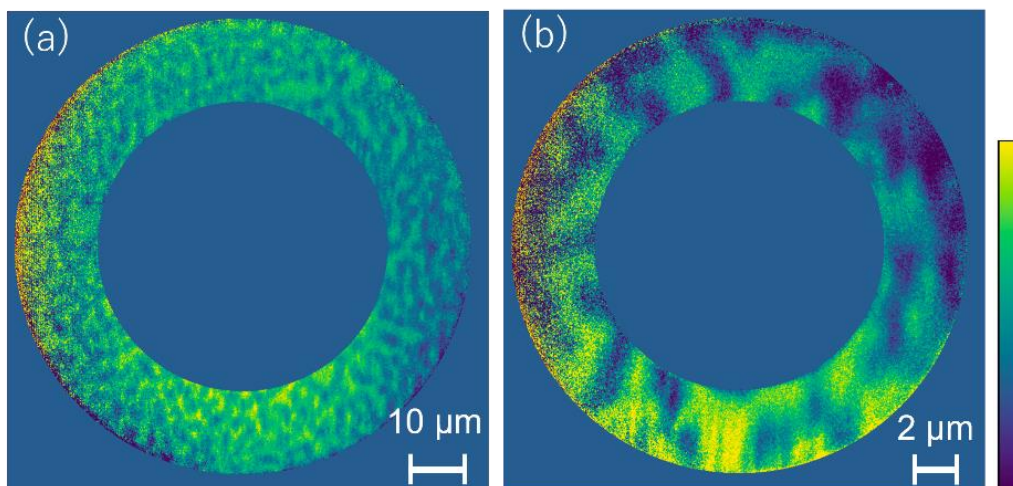
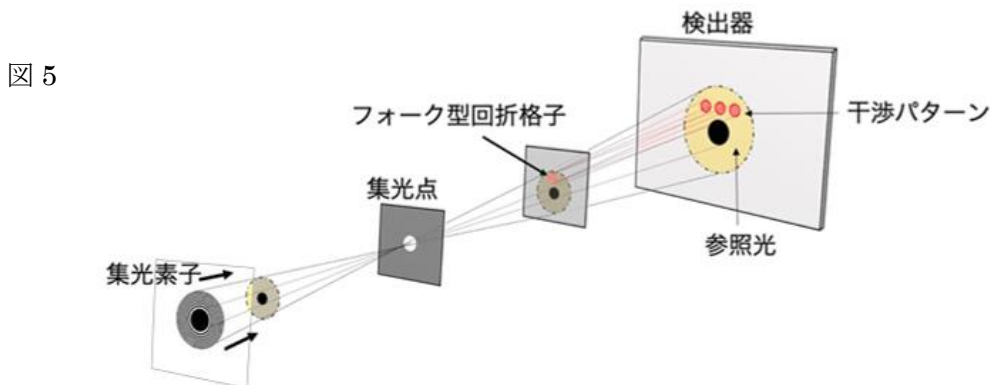


図4

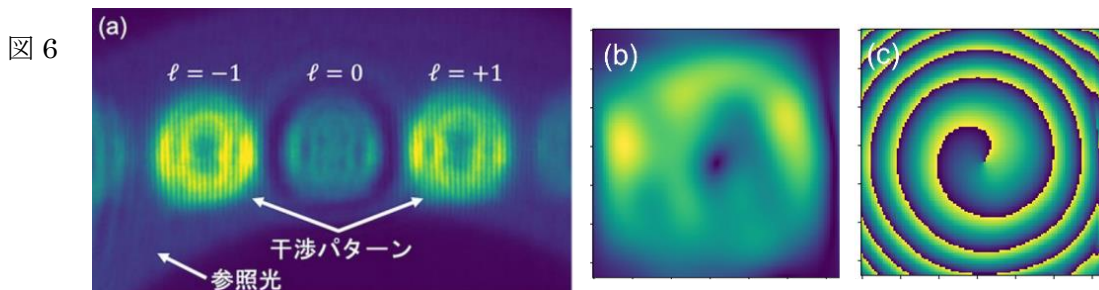


(2) 軟 X 線渦ビームのらせん波面の観測とトポロジカル欠陥構造に対する新たな観測手法の提案[6]

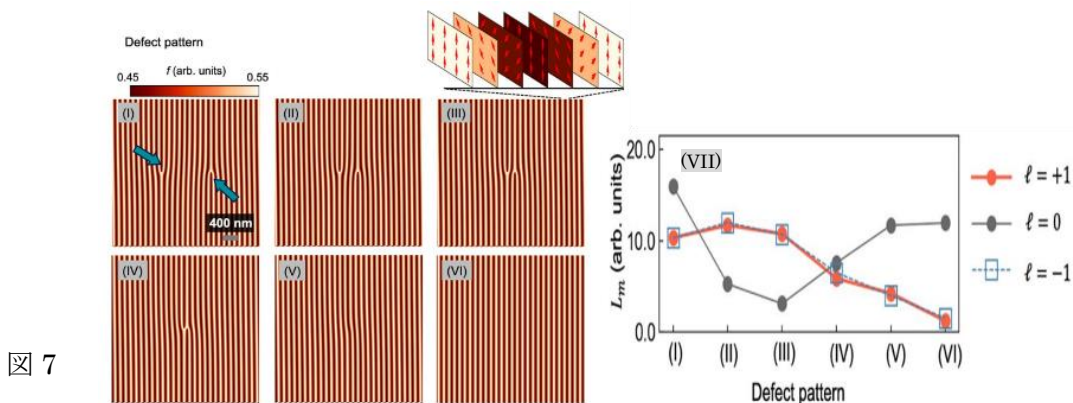
建設したマルチスケール軟 X 線回折顕微鏡では、上述のように簡便に試料の実像が測定可能であるが、回折の影響は少なからず存在する。今度はこの回折信号に着目した研究例である。図 5 に実験配置を示すが、その配置は図 2 とほぼ同じであるが、試料からの回折波が試料の周りを通り抜けてくる参照波と干渉し、検出器部でその干渉パターンが観測され、インラインホログラフィと呼ばれる実験手法が実現されている。



ここでは磁性体試料中で良く観測が報告されているトポロジカル欠陥構造の 1 つの例としてフォーク型回折格子を利用した測定を行った。このフォーク型回折格子は、1 次の回折波がトポロジカル数 1 ( $\ell = \pm 1$ ) の光渦ビームとなり、光渦を生成するための素子としても知られているものである [7]。図 6(a) のように、 $\ell = 0$  で示す回折格子を抜けてきた 0 次光、 $\ell = \pm 1$  で示す 1 次光と図全体にうっすらと帯状に広がっている参照波との干渉パターンの観測に成功した。また、1 次光の中を良く観察すると、参照波との干渉により縦の筋が入り、中心付近がフォーク型回折格子のパターンになっていることが分かる。これは、干渉パターンが位相情報を含んでいることを示している。そこで 1 次光 ( $\ell = 1$ ) の渦ビームの位相情報を取り出すために、周波数フィルタリングの手法を適用し、渦ビームの強度分布 [図 6(b)] と位相分布 [図 6(c)] の情報を各々取り出すことに成功した。また、ここでは示していないが、 $\ell = -1$  の渦ビームの位相分布の回転方向が逆転することや、様々な欠陥構造に対応したトポロジカルナンバをもつ回折波が観測されることを実験的に明らかにした。さらに、得られる位相像からトポロジカルナンバを定量的に決定する方法を提案し、本手法が磁性体中のトポロジカルな欠陥構造の評価手法の 1 つであることを実証した。



また、磁性体中のトポロジカル欠陥のダイナミクスを本手法で検出した場合のシミュレーションを行った (図 7)。2 つのトポロジカル欠陥が対消滅する過程 [図 7(I)-(VI)] での 1 次の回折波のトポロジカルナンバを評価した結果を図 7(VII) に示す。このように本手法により、2 つのトポロジカル欠陥構造の位置関係に応じて、トポロジカルナンバが変化していく様子を明らかにすることができた。



以上のように、建設した顕微鏡を立ち上げる中で、新たな顕微鏡の利用方法に気づき、磁性体のトポロジカル欠陥の特徴量であるトポロジカル数を評価する手法を実証できた。今後、これらの結果に基づき、軟 X 線領域の顕微鏡の新たな展開が期待される。

<引用文献>

- [1] H. Nakao et al., JPS Conf. Proc. **25** (2019) 011020; 中尾裕則 et al., 放射光 **34** (2021) 55; <https://research.kek.jp/people/hironori/beamlines/rsxs/>
- [2] Y. Yamasaki et al., Phys. Rev. B **92**, 220421 (2015).
- [3] V. Ukleev et al., Quantum Beam Sci. **2**, 3 (2018); V. Ukleev et al., Phys. Rev. B **99**, 144408 (2019).
- [4] Y. Suzuki and A. Takeuchi, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 086701 (2012); G. J. Williams et al., Phys. Rev. Lett. **97**, 025506 (2006).
- [5] Y. Ishii et al., JPS Conf. Proc. **38**, 011190 (2023).
- [6] Y. Ishii et al., Phys. Rev. Applied **14**, 064069 (2020); Y. Ishii et al., Sci. Rep. **12**, 1044 (2022).
- [7] J.C. T Lee et al., Nat. Photonics **13**, 205 (2019).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件／うち国際共著 1件／うちオープンアクセス 8件）

1. 著者名 Ishii Yuta, Kozuka Yusuke, Yamasaki Yuichi, Nakao Hironori	4. 巻 38
2. 論文標題 Development of Multi-scale Soft X-ray Diffraction Microscope for Observing Spin Textures	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 011190:1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.38.011190	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ishii Yuta, Nakao Hironori, Mizumaki Masaichiro, Wakabayashi Yusuke, Arima Taka-hisa, Yamasaki Yuichi	4. 巻 12
2. 論文標題 Topological charge of soft X-ray vortex beam determined by inline holography	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1044:1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-04933-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kimata Motoi, Sasabe Norimasa, Kurita Kensuke, Yamasaki Yuichi, Tabata Chihiro, Yokoyama Yuichi, Kotani Yoshinori, Ikhlas Muhammad, Tomita Takahiro, Amemiya Kenta, Nojiri Hiroyuki, Nakatsuji Satoru, Koretsune Takashi, Nakao Hironori, Arima Taka-hisa, Nakamura Tetsuya	4. 巻 12
2. 論文標題 X-ray study of ferroic octupole order producing anomalous Hall effect	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5582:1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-021-25834-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ishii Yuta, Yamamoto Kohei, Yokoyama Yuichi, Mizumaki Masaichiro, Nakao Hironori, Arima Taka-hisa, Yamasaki Yuichi	4. 巻 14
2. 論文標題 Soft-X-Ray Vortex Beam Detected by Inline Holography	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 064069:1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.14.064069	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takagi R., Yamasaki Y., Yokouchi T., Ukleev V., Yokoyama Y., Nakao H., Arima T., Tokura Y., Seki S.	4. 巻 11
2. 論文標題 Particle-size dependent structural transformation of skyrmion lattice	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5685:1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-19480-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Honda T., Yamasaki Y., Nakao H., Murakami Y., Ogura T., Kousaka Y., Akimitsu J.	4. 巻 10
2. 論文標題 Topological metastability supported by thermal fluctuation upon formation of chiral soliton lattice in CrNb <sub>3</sub> S <sub>6</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 18596:1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-74945-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Fukaya Ryo, Adachi Jun-ichi, Nakao Hironori, Yamasaki Yuichi, Tabata Chihiro, Nozawa Shunsuke, Ichiyanagi Kouhei, Ishii Yuta, Kimura Hiroyuki, Adachi Shin-ichi	4. 巻 29
2. 論文標題 Time-resolved resonant soft X-ray scattering combined with MHz synchrotron X-ray and laser pulses at the Photon Factory	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 1414 ~ 1419
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577522008724	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 石井祐太, 山崎裕一, 小塚裕介, Lustikova Jana, 新居陽一, 小野瀬佳文, 中尾裕則, 若林裕助
2. 発表標題 時分解XMCDを用いた強磁性共鳴における磁化歳差運動の直接観測
3. 学会等名 日本物理学会 第77 回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中尾裕則
2. 発表標題 軟X線領域のコヒーレンスを利用したイメージング手法の技術開発
3. 学会等名 2021年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石井祐太, 中尾裕則, 水牧仁一朗, 若林裕助, 有馬孝尚, 山崎裕一
2. 発表標題 軟X線光渦のトポロジカル数の決定
3. 学会等名 第35回日本放射光学会年会 放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石井祐太, 若林裕助, 山本航平, 横山優一, 水牧仁一朗, 中尾裕則, 有馬孝尚, 山崎裕一
2. 発表標題 In-line Holographyによる軟X線渦波の観測
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中尾裕則, 石井祐太, 小塚裕介, 山崎裕一
2. 発表標題 マルチスケール軟 X 線回折顕微鏡による磁気ドメインの観測
3. 学会等名 2020年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 石井祐太、若林裕助、山本航平、横山優一、水牧仁一郎、中尾裕則、有馬孝尚、山崎裕一
2. 発表標題 In-line Holography を用いた軟 X 線光渦の観測
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会 放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Ishii, Y. Kozuka, Y. Yamasaki, and H. Nakao*
2. 発表標題 Development of Multi-scale Soft X-ray Diffraction Microscope for Observing Spin Textures
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石井 祐太, 山崎 裕一, 小塚 裕介, 横山 優一, 水牧 仁一郎, L. Jana, 新居 陽一, 小野瀬 佳文, 中尾 裕則, 若林 裕助
2. 発表標題 時分割XMCDを用いたPt/Py薄膜中の磁気歳差運動の観測
3. 学会等名 第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中尾裕則
2. 発表標題 軟X線領域のコヒーレンスを利用したイメージング手法の技術開発
3. 学会等名 2022年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	山崎 裕一  (Yamasaki Yuichi)  (70571610)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・統合型材料開発・情報基盤部門・主幹研究員   (82108)	
研究 分担者	水牧 仁一郎  (Mizumaki Masaichiro)  (60360830)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・放射光利用研究基盤センター・コーディネーター   (84502)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------